

POWERED BY **Dialog**

New selective herbicide pyrazole derivs. - partic. active against perennial weeds e.g. flat stage
Patent Assignee: NISSAN CHEM IND LTD

Patent Family

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Week	Type
JP 60016974	A	19850128	JP 83124904	A	19830709	198510	B

Priority Applications (Number Kind Date): JP 83124904 A (19830709)

Patent Details

Patent	Kind	Language	Page	Main IPC	Filing Notes
JP 60016974	A		15		

Abstract:

JP 60016974 A

New cpds. are of formula (I). In (I), X is oxygen or nitro; Y is H, lower alkyl or halo; Z is 1-7C lower alkyl opt. substd. by hydroxy, acetyloxy, benzoyloxy, phenoxy or methanesulphonyl; 3-6C alkenyl opt. substd. by halo, phenyl or lower alkoxy carbonyl; propargyl; cyanomethyl; phenyl opt. substd. by halo; -C(R)HC(O)A; R is H, lower alkyl, phenyl or cyano; A is phenyl opt. substd. by halo or lower alkyl; lower alkoxy; opt. substd. by lower alkyl or phenyl; or lower alkyl. Prepn. of (I) comprises reacting cpd. of formula (III) with cpd. Hal-Z, or reacting cpd. of formula (IV) with cpd. HO-Z.

USE/ADVANTAGE - (I) exhibits high herbicidal effect partic. against perennial weeds such as flat stage, and has no phytotoxicity to paddy rice, corn, soybean, etc.

Derwent World Patents Index

© 2001 Derwent Information Ltd. All rights reserved.

Dialog® File Number 351 Accession Number 4232853



OK

26

⑬ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭60-16974

⑤ Int. Cl.⁴
C 07 D 231/20
A 01 N 43/56

識別記号 庁内整理番号
6779-4C
7215-4H

⑬ 公開 昭和60年(1985)1月28日
発明の数 4
審査請求 未請求

(全 15 頁)

⑭ ピラゾール誘導体、その製造方法および選択性除草剤

⑯ 特 願 昭58-124904

⑰ 出 願 昭58(1983)7月9日

⑱ 発 明 者 田中規生
船橋市坪井町722番地1日産化学工業株式会社中央研究所内

⑲ 発 明 者 谷口政和
船橋市坪井町722番地1日産化学工業株式会社中央研究所内

⑳ 発 明 者 馬場正紀
船橋市坪井町722番地1日産化学工業株式会社中央研究所内

学工業株式会社中央研究所内

㉑ 発 明 者 猪飼隆
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化学工業株式会社生物化学研究所内

㉒ 発 明 者 縄巻勤
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化学工業株式会社生物化学研究所内

㉓ 出 願 人 日産化学工業株式会社
東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1

最終頁に続く

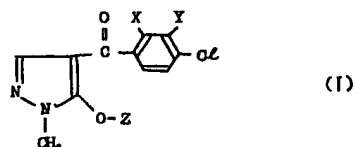
明 細 書

1. 発明の名称

ピラゾール誘導体、その製造方法および選択性除草剤

2. 特許請求の範囲

(1) 一般式 (I) :



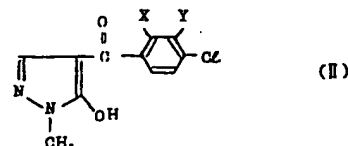
[式中、X は塩素原子またはニトロ基を示し、

Y は水素原子、低級アルキル基またはハロゲン原子を示す。Z はハロゲン原子、水酸基、アセチルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェノキシ基またはメタンスルホニルオキシ基で置換されてもよい炭素数1~7のアルキル基を、ハロゲン原子、フェニル基または低級アルコキシカルボニル基で置換されてもよい炭素数5~6のアルケニル

基を、プロパギル基を、シアノメチル基を、ハロゲン原子で置換されてもよいフェニル基を、 $-\text{CH}(\text{R})\text{COA}$ 基（ただし、式中、R は水素原子、低級アルキル基、フェニル基またはシアノ基を示し、A はハロゲン原子または低級アルキル基で置換されてもよいフェニル基を、低級アルコキシ基を、低級アルキル基またはフェニル基で置換されてもよいアミノ基を、または低級アルキル基を示す。）を、または 基を示す。]

で表されるピラゾール誘導体。

(2) 次式 (II) :



で表される化合物と。

一般式 (III) :



〔式中、Halはハロゲン原子を示し、Xは塩素原子またはニトロ基を示し、Yは水素原子、低級アルキル基またはハロゲン原子を示す。Zはハロゲン原子、水酸基、アセチルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェノキシ基またはメタンスルホニルオキシ基で置換されてもよい炭素数1~7のアルキル基を、ハロゲン原子、フェニル基または低級アルコキシカルボニル基で置換されてもよい炭素数3~6のアルケニル基を、プロパギル基を、シアノメチル基を、 $\begin{smallmatrix} -CH_2CO \\ | \\ R \end{smallmatrix}$ 基(ただし、式中、Rは水素原子、低級アルキル基、フェニル基またはシアノ基を示し、Aはハロゲン原子または低級アルキル基で置換されてもよいフェニル基を、低級アルコキシ基を、低級アルキル基またはフェニル基で置換されてもよいアミノ基を、また $\begin{smallmatrix} O \\ || \\ \text{3,5-} \end{smallmatrix}$ は $\begin{smallmatrix} O \\ || \\ \text{3,5-} \end{smallmatrix}$ 基を示す。〕

で表される化合物とを反応させることを特徴とする

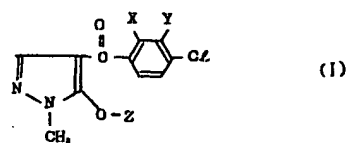
- 3 -

アセチルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェノキシ基またはメタンスルホニルオキシ基で置換されてもよい炭素数1~7のアルキル基を、ハロゲン原子、フェニル基または低級アルコキシカルボニル基で置換されてもよい炭素数3~6のアルケニル基を、プロパギル基を、シアノメチル基を、ハロゲン原子で置換されてもよいフェニル基を、 $\begin{smallmatrix} -CH_2CO \\ | \\ R \end{smallmatrix}$ 基(ただし、式中、Rは水素原子、低級アルキル基、フェニル基またはシアノ基を示し、Aはハロゲン原子または低級アルキル基で置換されてもよいフェニル基を、低級アルコキシ基を、低級アルキル基またはフェニル基で置換されてもよいアミノ基を、または低級アルキル基を示す。)を、または $\begin{smallmatrix} O \\ || \\ \text{3,5-} \end{smallmatrix}$ 基を示す。〕

で表される化合物とを反応させることを特徴とする

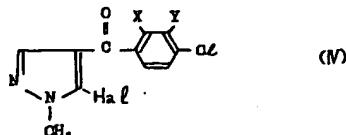
一般式(I):

一般式(I):



〔式中、X、Y、Zは前記と同じ意味を表す〕
で表されるピラゾール誘導体の製造方法。

(3) 次式(N):



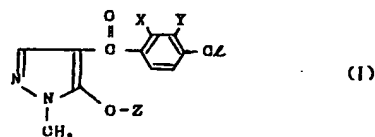
で表される化合物と、

一般式(V):



〔式中、Xは塩素原子またはニトロ基を、Yは水素原子、低級アルキル基またはハロゲン原子を示し、Halは塩素原子または臭素原子を示す。Zはハロゲン原子、水酸基、

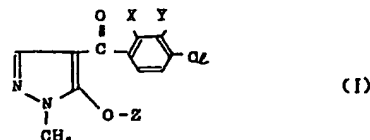
- 4 -



〔式中、X、Y、Zは前記と同じ意味を表す。〕

で表されるピラゾール誘導体の製造方法。

(4) 一般式(I):




〔式中、Xは塩素原子またはニトロ基を、Yは水素原子、低級アルキル基またはハロゲン原子を示す。Zはハロゲン原子、水酸基、アセチルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェノキシ基またはメタンスルホニルオキシ基で置換されてもよい炭素数1~7のアルキル基を、ハロゲン原子、フェニル基ま

- 5 -

- 6 -

たは低級アルコキシカルボニル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルケニル基を、プロパギル基を、シアノメチル基を、ハロゲン原子で置換されてもよいフェニル基を、

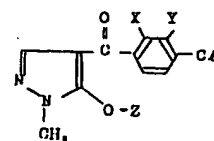
$\begin{array}{c} \text{OH} \\ | \\ \text{R}-\text{C}=\text{O} \end{array}$ 基(ただし、式中、Rは水素原子、低

級アルキル基、フェニル基またはシアノ基を示し、Aはハロゲン原子または低級アルキル基で置換されてもよいフェニル基を、低級アルコキシ基を、低級アルキル基またはフェニル基で置換されてもよいアミノ基を、または低級アルキル基を示す。)を、または  基を示す。]

で表されるピラゾール誘導体の1種または2種以上を有効成分として含有することを特徴とする選択性除草剤。

3. 発明の詳細な説明


本発明は、一般式(1)：



(1)

[式中、Xは塩素原子またはニトロ基を、Yは水素原子、低級アルキル基または、ハロゲン原子を示す。Zはハロゲン原子、水酸基、アセチルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェノキシ基またはメタンスルホニルオキシ基で置換されてもよい炭素数1～7のアルキル基を、ハロゲン原子、フェニル基または低級アルコキシカルボニル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルケニル基を、プロパギル基を、シアノメチル基を、ハロゲン原子で置換されてもよいフェニル基を、 $\begin{array}{c} \text{OH} \\ | \\ \text{R}-\text{C}=\text{O} \end{array}$ 基(ただし、式中、Rは水素原子、低級アルキル基、フェニル基またはシアノ基を示し、Aはハロゲン原子または低級アルキル基で置換されても

- 7 -

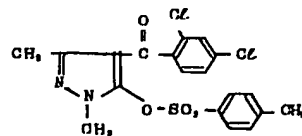
よいフェニル基を、低級アルコキシ基を、低級アルキル基またはフェニル基で置換されてもよいアミノ基を、または低級アルキル基を示す。)を、または  基を示す。]

で表される新規ピラゾール誘導体、その製造方法、および該誘導体の1種または2種以上を有効成分として含有する選択性除草剤に関するものである。

上記一般式(1)で表されるピラゾール誘導体(以下、本発明化合物という。)は、除草剤有効成分化合物として有用で、雑草を白化せしめ枯死に至らしめる特徴を有し、特に従来水田における難防除雑草に対しても、極めて少量施用で強力な殺草力を有している。

従来、ピラゾール誘導体としては、数多くの化合物が知られており、これらの中で、すでに水田用除草剤として実用化され、市販されているものとして、下記構造式で表されるピラゾレート(一般名)がある。

- 8 -



(化合物A)

一方、ピラゾール誘導体以外でも、水田用除草剤として数多くの除草剤が実用化されており、単剤または混合剤として一般に広く使用されている。しかしながら、水田で発生する多年生雑草は一般に生長が旺盛であり、また発生期間も長く防除に困難をきわめており、一年生雑草に有効な除草剤は数多いが、多年生雑草に卓効を示す除草剤は、ほとんどないのが現状である。また、最近の水稲栽培は、機械化の導入、移植時期の早期化などの要因により、雑草の発生には好適な条件となっており、1回の除草剤処理だけでは、一年生雑草および多年生雑草を完全に防除することを期待することは難しい状況となっている。

近年、水稲栽培において田植前後の時期に1回

- 9 -

-513-

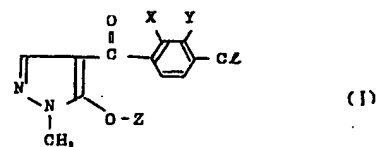
- 10 -

の薬剤散布で全雑草を完全に防除する試みが種々の単剤または混合剤でなされているが、除草効果は極めて不充分であり、したがって無理に1回だけの処理で効果を得る場合には単位面積当たりの投下薬量は多量を要することとなる。

このような上記の問題を解決するために、極めて低薬量で、且つ広範囲の雑草に有効な一回処理用除草剤の出現が要望されているのが現状である。

本発明者らは、種々検討を重ねてきた結果、広範囲の雑草に効力を示し、更にこれらの雑草のなかでも、従来特に防除が困難であり有効な除草剤が皆無に近かったミズガヤツリ、クログワイなどの多年生雑草に著しく効力の高い本発明化合物を見出し、本発明を完成するに到った。また、本発明化合物は、水稻に対する薬害が全くなく、安全に使用できるという効果も有するものである。

本発明化合物は前記の如く一般式(I)：



[式中、X、YおよびZは前記と同じ意味を表す。]

で表されるピラゾール誘導体である。

従来、除草活性を有するピラゾール誘導体としては、いくつかの化合物が知られており、例えば特公昭54-36648号および特開昭54-41872号公報には4-ベンゾイル誘導体が除草剤として有用であることが記載されている。

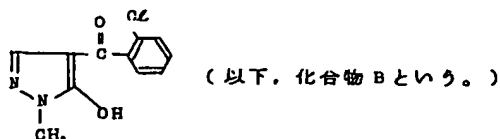
これらのピラゾール誘導体として実用化され、市販されているものは前記の化合物Aで示されるピラゾレート(一般名)のみである。

上記の特開昭54-41872号公報に記載されているピラゾール誘導体は、上記式(I)で表

- 11 -

される化合物のピラゾール環の3位がすべてOH基のみである。

また、上記の特公昭54-36648号公報に記載されているピラゾール誘導体は、上記式(I)で表される化合物のピラゾール環の3位がほとんど低級アルキル基であり、5位の置換基がOH、BH、その塩または特定の有機酸とのエステルである。このなかで、3-位が水素原子である場合は下記に示す如く、一例のみが実施例として具体的に記載されているだけである。



しかし、この化合物Bは、上記の特公昭54-36648号公報の生物試験データの記載からも明らかな如く市販の前記化合物Aに比べても除草活性が劣っている。

本発明者らは、本発明化合物と、これらの化合

- 12 -

物Aおよび化合物Bと比較試験を行なったところ、本発明化合物がはるかに優れた除草活性を有していることを確認した。

従来より数多くのピラゾール誘導体が合成され除草活性試験が行なわれていたにもかかわらずピラゾール環の3位が水素原子である化合物は前記の化合物Bのみであった。

その理由は、3-位にアルキル等の置換基を有する化合物(3-位アルキル誘導体)は、合成が比較的容易であるが、3-位が水素原子の場合にはその合成が非常に困難であったことおよび3-位アルキル誘導体に比べて除草活性が低く実用性に乏しいことによると考えられていた。本発明者らは、ピラゾール環の3-位が水素原子である化合物について種々検討した結果、容易に合成し得る方法を見出し、更に5-位の置換部分についても、各種検討した結果、前記一般式(I)で表される本発明化合物が強力な殺草力を有し、更に水稻に対する安全性も高く、水稻用除草剤として極めてすぐれた性質を有する

- 13 -

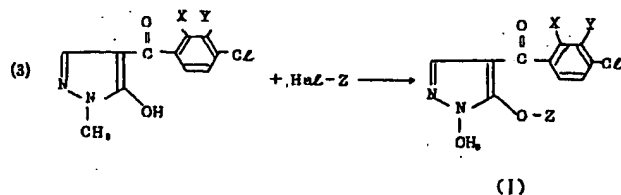
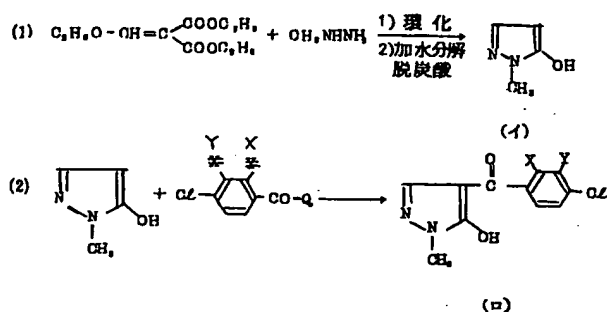
-514-

- 14 -

ことを見出した。

又、前記一般式(1)で表される本発明化合物は、トウモロコシ畑、ダイズ畑などで難防除^{雑草}剤として、極めて防除が困難なカヤツリグサ科多年生雑草であるハマスゲに対しても、著しく高い除草作用を示し、かつトウモロコシ、ダイズに対する薬害^害も認められず、畑作用除草剤としても極めて有用である。

次に、本発明化合物は、下記の反応式に従って容易に合成できる。



〔式中、Qはハロゲン原子または水酸基を、Halはハロゲン原子を表し、X、YおよびZは前記と同じ意味を表す。〕

反応式(1)はエトキシメチレンマロン酸ジエチルとメチルヒドラジンを原料として、4-カルボエトキシ-5-ヒドロキシ-1-メチルピラゾールを合成し、次いで加水分解・脱炭酸反応を行って5-ヒドロキシ-1-メチルピラゾール(イ)を得る反応を示す。

さらに化合物(イ)は反応式(2)に従って化合物(ロ)を原料として容易に合成することができる。

一例を示せば、化合物(イ)を脱ハロゲン化水素剤(望ましくは水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、トリエチルアミン、ピリ

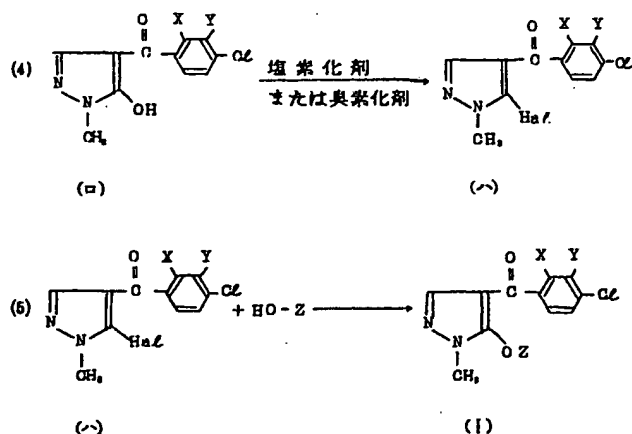
ジン)の存在下、反応に不活性な溶媒中で種々のベンゾイルハライドと反応させてエステルとし、これを転位させて化合物(ロ)を高収率で得ることができる。エステル化反応の溶媒としては例えばジオキササン、アセトニトリル、ベンゼン、トルエン、クロロホルム等を単一で用いることができるのはもちろんであるが、例えば水-トルエン、水-クロロホルム等の二相系も利用することができる。

転位反応は無溶媒もしくは反応に不活性な溶媒(望ましくはジオキササン、アセトニトリル等)中で塩化アルミニウム、塩化スズ、塩化亜鉛等のルイス酸もしくは水酸化カルシウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等の塩基の存在で容易に進行させることができる。

反応式(3)は、化合物(イ)と適当なハライド類を縮合させて本発明化合物(1)を得る反応を示す。この反応は反応に不活性な溶媒(例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキササン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレ

ン等の芳香族炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ジクロルメタン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、酢酸エチル、N,N-ジメチルホルムアミド、アセトニトリル等を単一、もしくは混合して用いることができる。)中で脱ハロゲン化水素剤(例えば、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基類、ピリジン、トリエチルアミン、N,N-ジメチルアニリン等の有機塩基類があげられる。)の存在下で行なうことが望ましい。反応温度は室温から、用いられる溶媒の沸点の間で可能であるが、溶媒の沸点に設定することが操作上もっとも有利である。反応式(3)に示す縮合反応を上記諸条件を考慮した適当な条件下で行なえば、本発明化合物(1)を極めて良好な収率で得ることができる。

また、(3)で示される反応の代りに(4)、(5)によって示される反応によっても本発明化合物を容易に合成することができる。



〔式中、Hal は塩素原子または臭素原子を表し、
X, Y, Z は前記と同じ意味を表す。〕

例えば、化合物(4)を反応式(4)に示すように適当なハロゲン化剤（好ましくは、オキシ塩化リン、オキシ臭化リン、五塩化リン、五臭化リン、トリフェニルホスフィンジクロライド、トリフェニルホスフィンジブロマイド）を単一又は、反応に関与しない適当な溶媒を用いて 5-ハロゲ

ン化ピラゾール(4)に容易に、かつ高収率で変換できる。反応温度は反応試剤もしくは用いる溶媒の沸点に設定する場合が好結果を与える。さらに、反応式(5)は、反応式(4)によって得た中間体(4)と、適当なアルコールまたはフェノールを縮合させて本発明化合物(1)を得る反応を示す。この反応は、反応に不活性な溶媒（例えば、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、N,N-ジメチルホルムアミド、ヘキサメチルホスフォリックトリアミド及び水など）中で、適当な塩基性物質（例えば水素化ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなど）を用いて、好収率で行なうことができる。反応温度は特に限定はなく、室温から使用する溶媒の沸点までの間で可能である。以上、反応式(1)～(5)によって示される反応によって、本発明化合物(1)を得る反応を次の実施

- 19 -

例によって示す。

実施例 1 1-メチル-5-ヒドロキシピラゾールの合成

エタノール 150 ml 及びエトキシメチレンマロン酸ジエチルエステル 108 g (0.5 モル) を 0℃以下に冷却し、反応温度を 0℃以下に保持しながら、メチルヒドラジン 23 g (0.5 モル) を滴下した。滴下終了後、室温中で 1 時間攪拌し、次いで 1 時間還流した。次いで、この反応混合物に濃塩酸 200 ml を加えて 2 時間還流した。反応終了後、この反応装置の還流冷却器を水分分離装置と交換し、反応混合物にブタノールを加えた後、共沸脱水を行なった。脱水完了後、減圧下でブタノールを留去し、残渣をイソプロピルアルコールで再結晶し、標記目的化合物 38 g (0.38 モル) を塩酸塩として得た。収率 76%、融点 135～147℃。

実施例 2 4-(2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾールの合成

1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール塩酸塩 13.5 g (0.1 モル) を水酸化カリウム 11.2 g (0.2 モル) の 20% 水溶液中に 0℃にて溶解した後、クロロホルム 50 ml を加え、さらに、2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイルクロライド 22.4 g (0.1 モル) を滴下し、室温にて 2 時間反応させた。反応液からクロロホルム層を分液し、乾燥後、溶媒を減圧にて留去して得られた固体に、1,4-ジオキサン 25 ml、炭酸カリウム 27.6 g (0.2 モル) を加え 100～120℃に加熱した。反応中、1 時間程度で固体が得られたのち、溶媒を留去し、さらに、イソプロピルアルコール 30 ml を加え、30 分還流した。得られた粉末状固体を氷水中に注ぎ、溶解後、塩酸酸性となし、生成した固体を分別乾燥後、95% エタノールより再結晶すると目的物が 20.2 g 得られた。(収率 71%) 融点：131.0～135.0℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ, ppm): 2.50 (3H, s), 3.66 (3H, s)

実施例 3 4-(2,4-ジクロルベンゾイル)
-1-メチル-5-アシルピラゾールの
合成 (化合物番号 7)

4-(2,4-ジクロル^{ベン}ベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール 1.36g (0.005モル)を、トリエチルアミン 0.5g (0.005モル)を含む無水ベンゼン 20mlに溶解後アシルブロマイド 0.72g (0.006モル)を加え、3時間加熱還流した。生成した塩を伊別した後、溶媒を減圧にて留去して得られた油状物を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液、ベンゼン:酢酸エチル=10:1)で精製すると目的物が無色油状物として 0.95g 得られた。(収率 61%)

¹H-NMR(δ , ppm, CDCl₃): 3.65 (3H, s), 4.99 (2H, d, J=6Hz), 5.15~5.32 (3H, m), 7.26~7.42 (4H)

実施例 4 4-(2,4-ジクロルベンゾイル)
-1-メチル-5-シアノメチルピラゾールの合成 (化合物番号 13)

含む 1,4-ジオキササン 30ml中に加えた後、4-(2,4-ジクロルベンゾイル)-1-メチル-5-クロルピラゾール(特願昭57-213377, 実施例4に準じて合成)を加え、3時間加熱還流した。

反応混合物から溶媒を減圧にて留去した後、水 50mlを加え、酢酸エチルにて抽出した。有機層を分取後、常法に従って後処理を行ない、溶媒を減圧にて留去後、実施例4と同様のシリカゲルカラムクロマトグラフィーを行なって目的物を油状物として 1.40g 得た。

(収率 92%)

¹H-NMR(δ , ppm, CDCl₃): 3.66 (3H, s), 4.89 (4H, double d), 7.30 (3H), 7.74 (1H, s)

実施例 6 4-(2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイル)-1-メチル-5-フェナシルオキシピラゾールの合成
(化合物番号 32)

4-(2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール

4-(2,4-ジクロルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール 2.71g (0.01モル)、トリエチルアミン 1.01g (0.01モル)をベンゼン 50ml中に溶解し、クロルアセトニトリル 0.76g (0.01モル)を加えて、2時間加熱還流した。反応混合物を放冷後、生成した塩を伊別し、溶媒を減圧下留去した。得られた褐色油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液:ベンゼン:酢酸エチル=8:1)にて精製すると、目的物が 2.7g 得られた。(収率 87%)

融点: 84.0~86.0℃

¹H-NMR(δ , ppm, CDCl₃): 3.75 (3H, s), 5.43 (2H, s), 7.53~7.46 (4H)

実施例 5 4-(2,4-ジクロル^{ベン}ベンゾイル)
-1-メチル-5-(4-クロルフェノキシ)ピラゾールの合成
(化合物番号 29)

4-クロルフェノール 1.29g (0.01モル)を、水酸化ナトリウム 0.4g (0.01モル)を

1.43g (0.005モル)を、トリエチルアミン 0.50g (0.005モル)を含む無水ベンゼン 30mlに溶解した後、フェナシルブロマイド 1.00g (0.005モル)を加え、加熱還流下で3時間反応させた。以下実施例4と同様の後処理を行なって目的物を無色結晶として 1.81g 得た。(収率 90%)

融点: 132.0~135.0℃

¹H-NMR(δ , ppm, CDCl₃): 2.41 (3H, s), 3.79 (3H, s), 6.07 (2H, s), 6.93~7.75 (8H)

実施例 7 4-(4-クロル-2-ニトロベンゾイル)-1-メチル-5-フェナシルオキシピラゾールの合成
(化合物番号 35)

実施例6において出発物質の4-(2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾールを4-(4-クロル-2-ニトロベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール 1.40g (0.005モル)

に変わること除いては、全く同様の操作と処理を行なって、目的物を淡黄色結晶として1.63g得た。(収率82%)

融点: 141.0~143.0℃

¹H-NMR(δ, ppm, CDCl₃): 3.86(3H, s), 4.06(2H, s), 7.10~8.11(9H)

実施例8 4-(2,3,4-トリクロルベンゾイル)-1-メチル-5-フェナシロキシピラゾールの合成

(化合物番号39)

実施例6において、出発物質の4-(2,4-ジクロル-3-メチルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾールを4-(2,3,4-トリクロルベンゾイル)-1-メチル-5-ヒドロキシピラゾール1.53g(0.005モル)に変わること除いては全く同様の操作と処理を行なって目的物を淡黄色結晶として1.55g得た。(収率78%)

融点: 138.0~142.0℃

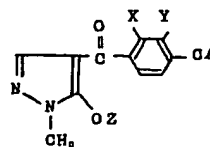
¹H-NMR(δ, ppm, CDCl₃): 3.81(3H, s), 4.08

(2H, s), 7.01~7.93(8H)

次に実施例1ないし実施例8と同様な方法によって第1表に示す化合物を合成した。

実施例3ないし実施例8で得た本発明化合物も含めて第1表に示す。

式:



で表される化合物

第 1 表

化合物番号	X	Y	Z	性状・融点	¹ H-NMR(δ, ppm, CDCl ₃)	
					N-OH ₂	その他の特徴的なピーク
1	Cl	H	-CH ₃	油状物	3.64	4.20(3H, s)
2	Cl	H	-O ₂ H ₂	油状物	3.67	1.39(3H, t, J=7Hz) 4.53(2H, q, J=7Hz)
3	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	油状物	3.64	4.45(2H, t, J=6Hz)
4	Cl	H	-CH ₂	油状物	3.70	4.31(2H, d, J=7Hz)

- 27 -

- 28 -

化合物番号	X	Y	Z	性状・融点	¹ H-NMR(δ, ppm, CDCl ₃)	
					N-OH ₂	その他の特徴的なピーク
5	Cl	H	-CH ₂	油状物	3.66	4.25(4H, d, J=6Hz)
6	Cl	H	-CH ₂	油状物	3.77	1.24~2.44(3H) 4.66(2H, m)
7	Cl	H	-CH ₂ CH=CH ₂	油状物	3.65	4.99(2H, d, J=6Hz) 5.15~6.32(3H, m)
8	Cl	H	-CH ₂ COOCH ₃	油状物	3.74	5.20(2H, s) 5.49(2H, m)
9	Cl	H		油状物	3.29	0.9~2.4
10	Cl	H	-CH ₂ CH=CH	油状物	3.66	5.14(2H, d, J=6Hz)
11	Cl	H	-CH ₂ CH=CHCH ₂ CH ₂ CH ₃	油状物	3.67	3.90(2H, m) 5.05(2H, m)
12	Cl	H	-CH ₂ CH=CH	油状物	3.71	2.59(1H, t, J=2.5Hz) 5.19(2H, d, J=2.5Hz)
13	Cl	H	-CH ₂ CH	mp 84.0~86.0℃	3.75	5.43(2H, s)

- 29 -

化合物番号	X	Y	Z	性状・融点	¹ H-NMR(δ, ppm, CDCl ₃)	
					N-OH ₂	その他の特徴的なピーク
14	Cl	H	-CH ₂ COOCH ₂ CH ₃	油状物	3.78	1.25(3H, t, J=7Hz) 4.18(2H, q, J=7Hz) 5.25(2H, s)
15	Cl	H	-CH ₂ COOCH ₃	油状物	3.71	1.73(3H, d, J=7Hz) 3.80(3H, s) 5.75(2H, q, J=7Hz)
16	Cl	H	-CH ₂ CH=CHCOOCH ₂ CH ₃	油状物	3.68	1.28(3H, t, J=7Hz) 4.19(2H, q, J=7Hz) 5.23(2H, d, J=5Hz)
17	Cl	H	-CH ₂ CH=CH	mp 179~181℃	3.32 3.84	6.70(1H, s)
18	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ OH	油状物	3.70	3.90(2H, t, J=4.5Hz) 4.55(2H, t, J=4.5Hz)
19	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ OCOCH ₃	油状物	3.67	2.04(3H, s) 4.30~4.80(4H, m)
20	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ OCO	油状物	3.63	4.5~4.98(4H, m)
21	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ O	油状物	3.61	4.12~4.90(4H, m)
22	Cl	H	-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	油状物	3.71	3.02(3H, s) 4.46~4.89(4H, m)

- 30 -

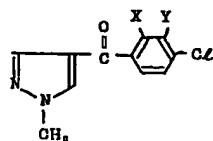
化合物 番号	X	Y	Z	性状・融点	¹ H NMR (δ, ppm, CDCl ₃)	
					N-CH ₃	その他の特徴的なピーク
23	OL	H	-CH ₂ CO-	mp 91.5~92.5℃	3.84	6.08(2H, s)
24	OL	H	-CH ₂ CO-	mp 129~130.5℃	3.84	6.06(2H, s)
25	OL	H	-CH ₂ CO-	mp 102~105℃	3.84	2.55(3H, s) 6.05(2H, s)
26	OL	H	-CH ₂ CO-	油状物	3.81	5.95(2H, s)
27	OL	H	-CH ₂ COO(CH ₃) ₂	油状物	3.79	1.15(9H, s) 5.71(2H, s)
28	OL	H		mp 176~181℃	3.84	6.02(1H)
29	OL	H	-	油状物	3.66	6.89(4H, double d) 7.74(1H, s)
30	OL	H	-CHOO-	油状物	3.84	1.70(3H, d, J=7Hz) 2.56(3H, s) 6.95(4H, q, J=7Hz)
31	OL	H	-CHOO-	油状物	3.80	2.44(3H, s) 5.95(2H, s)

化合物 番号	X	Y	Z	性状・融点	¹ H NMR (δ, ppm, CDCl ₃)	
					N-CH ₃	その他の特徴的なピーク
32	OL	CH ₃	-CH ₂ CO-	mp 132~135℃	3.79	2.41(3H, s) 6.07(2H, s)
33	OL	CH ₃	-CH ₂ CO-	mp 98~101℃	3.83	2.54(3H, s) 2.42(3H, s) 6.07(2H, s)
34	OL	CH ₃	-CHCO-	油状物	3.85	1.71(3H, d, J=7Hz) 2.56(3H, s) 2.43(3H, s) 6.94(1H, q, J=7Hz)
35	NO ₂	H	-CH ₂ CO-	mp 141~143℃	3.86	6.06(2H, s)
36	NO ₂	H	-CH ₂ CO-	油状物	3.84	6.02(2H, s) 2.34(3H, s)
37	OL	H	-CHOO-	mp 136~140℃	3.80	-
38	OL	H	-CHOO-	油状物	3.77	6.74(1H, s) 4.16(2H, q, J=7Hz) 1.17(3H, t, J=7Hz)
39	OL	OL	-CH ₂ CO-	mp 138.0~142.0℃	3.81	6.08(2H, s)
40	OL	Br	-CH ₂ CO-	油状物	3.85	6.07(2H, s)

- 31 -

次に、前記の実施例に準じて、以下の化合物も容易に合成できる。これらを第2表に示す。本発明化合物はこれらのみに限定されるものではない。

式：



で表される化合物

第 2 表

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
41	OL	H	-CH ₂ CO-	44	OL	H	-CH ₂ CO-
42	OL	H	-CH ₂ CO-	45	OL	H	-CH ₂ CO-
43	OL	H	-CH ₂ CO-	46	OL	H	-CH ₂ CO-

- 33 -

- 32 -

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
47	OL	H	-CH ₂ CO-	56	OL	H	-CHOO-
48	OL	H	-CH ₂ CO-	57	OL	H	-CH ₂ CO-
49	OL	H	-CH ₂ CO-	58	OL	H	-CHOO-
50	OL	H	-CH ₂ CO-	59	OL	H	-CHOO-
51	OL	H	-CH ₂ CO-	60	OL	H	-CHOO-
52	OL	H	-CH ₂ CO-	61	OL	H	-CHOO-
53	OL	H	-CH ₂ CO-	62	OL	H	-CHOO-
54	OL	H	-CHOO-	63	OL	H	-CHOO-
55	OL	H	-CHCO-	64	OL	H	-CHOO-

- 34 -

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
65	OL	H	$-\text{CHCO}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{OH}(\text{CH}_2)_3$	74	OL	H	$-\text{CHCOOC}(\text{CH}_3)_3$ $ \text{ON}$
66	OL	H	$-\text{CH}_2\text{OH}=\text{CH}-\text{CH}_3$	75	OL	H	$-\text{C}_6\text{H}_5$
67	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_3$	76	OL	H	$-\text{C}_6\text{H}_5$
68	OL	H	$-\text{CHCOOC}_2\text{H}_5$	77	OL	H	$-\text{C}_6\text{H}_5$
69	OL	H	$-\text{CHCOOC}_2\text{H}_5$ $ \text{ON}$	78	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
70	OL	H	$-\text{CHCO}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{ON}$	79	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
71	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCH}_2\text{OL}$	80	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CBr}=\text{CH}_2$
72	OL	H	$-\text{CHCH}=\text{CH}_2$ $ \text{CH}_2\text{OL}$	81	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CO}=\text{CHOL}$
73	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	82	OL	H	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$

- 35 -

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
83	OL	H	$-\text{C}_6\text{H}_5$	92	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$
84	OL	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCOOCH}_3$	93	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCOOCH}_3$
85	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_5$	94	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
86	OL	CH ₃	$-\text{O}_2\text{H}_2$	95	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
87	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	96	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
88	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}=\text{CH}_2$	97	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
89	OL	CH ₃	$-\text{C}_6\text{H}_5$	98	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$
90	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CN}$	99	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
91	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	100	OL	CH ₃	$-\text{CHCO}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{OH}_2$

- 36 -

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
101	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{COCH}(\text{CH}_3)_3$	110	OL	CH ₃	$-\text{C}_6\text{H}_5$
102	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2$	111	OL	CH ₃	$-\text{C}_6\text{H}_5$
103	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CBr}=\text{CH}_2$	112	OL	CH ₃	$-\text{CHCO}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{C}_2\text{H}_5$
104	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2$	113	NO ₂	H	$-\text{C}_6\text{H}_5$
105	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2$	114	NO ₂	H	$-\text{CH}_2$
106	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2$	115	NO ₂	H	$-\text{CH}_2$
107	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCH}_2\text{Br}$	116	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$
108	OL	CH ₃	$-\text{CHCON}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{ON}$	117	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}=\text{CH}_2$
109	OL	CH ₃	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$	118	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CBr}=\text{CH}_2$

- 37 -

化合物 番号	X	Y	Z	化合物 番号	X	Y	Z
119	NO ₂	H	$-\text{CH}_2$	128	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
120	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	129	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$
121	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{ON}$	130	NO ₂	H	$-\text{CHCO}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{OH}_2$
122	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCOOCH}_3$	131	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$
123	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$	132	NO ₂	H	$-\text{CH}_2$
124	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{COOC}(\text{CH}_3)_3$	133	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2$
125	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$	134	NO ₂	H	$-\text{CH}_2$
126	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$	135	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCH}_2\text{Br}$
127	NO ₂	H	$-\text{CH}_2\text{CO}-\text{C}_6\text{H}_5$	136	NO ₂	H	$-\text{CHCON}-\text{C}_6\text{H}_5$ $ \text{ON}$

- 38 -

化合物番号	X	Y	Z	化合物番号	X	Y	Z
137	NO ₂	H		146	Cl	Cl	-CH ₂ CH=CH ₂
138	NO ₂	H		147	Cl	Cl	-CH ₂ CN
139	NO ₂	H		148	Cl	Cl	
140	NO ₂	H		149	Cl	Cl	-CH ₂ COO(CH ₂) ₂
141	NO ₂	H		150	Cl	Cl	
142	Cl	H	-CH ₂ COCH ₃	151	Cl	Cl	
143	Cl	H		152	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.
144	Cl	Cl	-O ₂ H ₂	153	Cl	Cl	
145	Cl	Cl	-CH ₂ -	154	Cl	Br	CH ₃

化合物番号	X	Y	Z	化合物番号	X	Y	Z
155	Cl	Br	-CH ₂ -	164	Cl	Br	-CH ₂ ON
156	Cl	Br	-CH ₂ C≡CH	165	Cl	Cl	-CH ₂ COOH
157	Cl	Br		166	Cl	Cl	
158	Cl	Br	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.	167	Cl	Cl	
159	Cl	Br	-CH ₂ CH=CHCOOCH ₃	168	Cl	Cl	
160	Cl	Br	-CH ₂ -	169	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.
161	Cl	Br		170	Cl	Cl	-OHCO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.
162	Cl	Br	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.	171	Cl	Cl	-CH ₂ COOCH ₂ (CH ₂) ₂
163	Cl	Br	-CH ₂ COOCH ₂ (CH ₂) ₂	172	Cl	Cl	-CH ₂ CH=CHCOOCH ₃

- 39 -

- 40 -

化合物番号	X	Y	Z	化合物番号	X	Y	Z
173	Cl	Cl	-CH ₂ -	180	Cl	Cl	
174	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.	181	Cl	Cl	
175	Cl	Cl	-CH ₂ -	182	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a fluorine atom at the para position.
176	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.	183	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a chlorine atom at the para position.
177	Cl	Cl		184	Cl	Cl	
178	Cl	Cl	-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂	185	Cl	Cl	-CH ₂ CO- attached to a benzene ring with a bromine atom at the para position.
179	Cl	Cl	-CH ₂ CH=CHCH ₂ Br				

本発明化合物を除草剤として応用するにあたっては、一般には、適当な担体、例えばクレー、タルク、ペントナイト、珪素土等の固体担体あるいは水、アルコール類（メタノール、エタノール等）、芳香族炭化水素類、エーテル類、ケトン類、エステル類（酢酸エテル等）、酸アミド類（ジメチルホルムアミド等）などの液体担体と混用して応用することができ、所望により乳化剤、分散剤、湿潤剤、浸透剤、展着剤、安定剤などを添加し、乳剤、水和剤、粉剤、粒剤等任意の剤型にて実用に供することができる。また必要に応じて製剤または散布時に他の除草剤、各種殺虫剤、殺菌剤、共力剤などと混合施用してもよい。

次に具体的に本発明化合物を用いる場合の製剤の配合例を示す。部は任意部を示す。但し本発明の配合例は、これらのみに限定されるものではない。

配合例 1 粒 剤

- 41 -

- 521 -

- 42 -

本発明化合物 32	5 部
ベントナイト	55 部
タルク	40 部

以上を均一に混合粉碎して後、少量の水を加えて攪拌混合捏和し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して粒剤にする。

配合例 2 水和剤

本発明化合物 39	50 部
ジークライト A	46 部
(カオリン系クレー：ジークライト工業㈱商品名)	
ソルボール 5039	2 部
(非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混合物：東邦化学㈱商品名)	
カーブレックス (固結防止剤)	2 部
(ホワイトカーボン：塩野鉄製薬㈱商品名)	

以上を均一に混合粉碎して水和剤とする。使用に際しては上記水和剤を水で50～1000倍に希釈して、有効成分量が1ヘクタール(ha)当たり0.025～10kgの割合になるように散布する。なお、本発明化合物は、畑地、水田、果

樹園などの農園芸以外に運動場、空地、線路端など非農耕地における各種雑草の防除にも適用することができ、その施用薬量は適用場面、施用時期、施用方法、対象草種、栽培作物等により差異はあるが、一般には1ヘクタール(ha)当たり0.025～10kg程度の割合が適当である。

次に本発明化合物の除草剤としての有用性を以下の試験例において具体的に説明する。

試験例 1 土壌処理による除草効果試験

縦15cm、横22cm、深さ6cmのプラスチック製箱に殺菌した表層土壌を入れ、イエローハマスグ塊莖及びトウモロコシ、ダイズの種子を植えつけた。

約15cm覆土した後有効成分量が所定の割合となるように土壌表面へ均一に散布した。

散布の際の薬液は、前記配合例の水和剤を水で希釈して小型スプレーで全面に散布した。薬液散布4週間後にイエローハマスグに対する除草効果を下記の判定基準に従い調査した。

結果は第3表に示す。

- 43 -

判定基準

- 5 … 殺草率90%以上(ほとんど完全枯死)
- 4 … 70～90%
- 3 … 40～70%
- 2 … 20～40%
- 1 … 5～20%
- 0 … 5%以下(ほとんど効力なし)

但し、上記の殺草率は、薬剤処理区の地上部生草重および無処理区の地上部生草重を測定して下記の式により求めたものである。

$$\text{殺草率(\%)} = \left(1 - \frac{\text{処理区の地上部生草重}}{\text{無処理区の地上部生草重}} \right) \times 100$$

- 44 -

第 3 表

化合物番号	有効成分の処理量 (kg/ha)	イエローハマスグ	トウモロコシ	ダイズ
1	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
7	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
8	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
9	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
12	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
13	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
14	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
16	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
18	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
19	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0

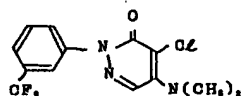
- 45 -

- 522 -

- 46 -

化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	イエロー ハマスグ	トウモロコシ	ダイズ
20	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
22	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
27	2.5	5	0	0
	1.25	5	0	0
* 比較化合物 E	2.5	5	5 ㊦	4 ㊦
	1.25	4	4 ㊦	3 ㊦

* 比較化合物 E の構造式：



(市販品で一般名はメトフルazon)

試験例 2 湛水条件における除草効果試験

1/5,000アールのワグネルポット中に培養土
を入れたのち、水を入れて混和し水深 1 cm の
湛水条件とした。

前年度に多年生雑草多発水田から採取したミズ
ガヤツリ塊茎を上記の湛水下条件のワグネルポ
ットの土壌中に植えつけ更にホタルイ種子を散
播した。2日後、あらかじめ育苗箱中で生育さ
せた25葉期の稲(品種：日本晴)を、上記の
ワグネルポットに2本ずつ、3ヶ所移植し
た。次に所定の葉位になるように薬剤希釈液を
水面へメスピベットで滴下処理した。

薬液滴下後3週間目に各稲株の生体量を測定
し、除草率を算出した。但し、雑草の白化し
た部分は枯死部分として結果は第4表に示す。

$$\text{除草率}(\%) = \left(1 - \frac{\text{処理区の地上部生体量}}{\text{無処理区の地上部生体量}}\right) \times 100$$

- 47 -

又、同時にイネの生育状況を下記判定基準に従
って調査し薬害の程度を判定し、第4表に示す。

判定基準

- 5 … 作物はほとんど完全枯死
- 4 … “ に対する薬害が顕著
- 3 … “ “ 薬害が認められる
- 2 … “ “ 薬害が若干認められる
- 1 … “ “ 薬害はほとんど認められない
- 0 … “ “ 薬害は認められず

これらのイネの試験区の結果は無処理区と比べ
て草丈及び葉数ともほとんど同じ生育状況であ
った。

- 48 -

第 4 表

化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	ホタルイ	ミズガヤツリ	移植水稻
1	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
2	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
4	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
5	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
7	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
8	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
9	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0

化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	ホタルイ	ミズガヤツリ	移植水稻
11	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
12	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
13	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
14	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
15	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
16	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
17	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
18	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0

- 51 -

化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	ホタルイ	ミズガヤツリ	移植水稻
19	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
20	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
22	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
23	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
24	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
25	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
26	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
27	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0

- 52 -

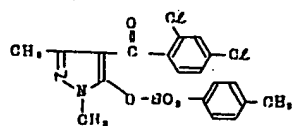
化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	ホタルイ	ミズガヤツリ	移植水稻
28	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
29	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
30	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
31	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
32	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
33	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
34	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
35	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0

- 53 -

化合物番号	有効成分 の処理量 (kg/ha)	ホタルイ	ミズガヤツリ	移植水稻
36	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
37	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
39	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
40	0.5	100	100	0
	0.25	100	100	0
	0.125	100	100	0
☆ 化合物 A (对照)	0.5	65	58	0
	0.25	28	25	0
	0.125	11	10	0
☆ 化合物 B (对照)	0.5	48	38	0
	0.25	23	12	0
	0.125	8	0	0
☆ 化合物 C (对照)	0.5	56	53	0
	0.25	23	25	0
	0.125	3	10	0
☆ 化合物 D (对照)	0.5	70	80	2
	0.25	35	55	1
	0.125	15	28	1

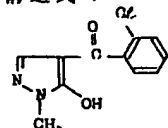
- 54 -

化合物 A の構造式：



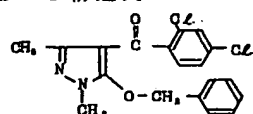
(特公昭54-36648号公報記載の化合物)

化合物 B の構造式：



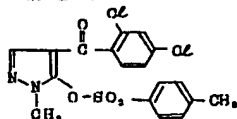
(特公昭54-36648号公報記載の化合物)

化合物 C の構造式：



(実施例に準じて合成した比較化合物)

化合物 D の構造式：



(実施例に準じて合成した比較化合物)

第1頁の続き

⑦発明者 松永政司

東京都千代田区神田錦町3丁目
7番地1 日産化学工業株式会社
内

